

令和 4 年 5 月 25 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2021

課題番号：20K20896

研究課題名（和文）中性子非弾性散乱によるスピノンスピンの検証

研究課題名（英文）Study on spinon spin current by inelastic neutron scattering technique

研究代表者

益田 隆嗣（Masuda, Takatsugu）

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：90313014

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：中性子散乱実験により、擬一次元反強磁性体BaCu₂Si₂O₇の連続磁気励起を観測し、詳細なスペクトル解析から当該物質の素励起がスピノンであることを明らかにした。この結果を受け、スピンゼーベック効果により誘起されるスピノンスピンを中性子非弾性散乱実験で検出することを試みたが、本課題の実験条件では検出されなかった。後日、スピンの媒体がスピノンとなる温度領域は、想定よりも高温であることが明らかとなった。本課題終了後も、試料体積、温度、使用分光器などの実験条件を様々に変化させることにより、スピノンスピンの検証を継続する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一次元反強磁性体は、強磁性体と異なり漏れ磁場は存在せず、また本質的に磁気秩序が不在であることからスピントロニクスデバイスのダウンスケールによる磁気秩序の変化を考慮する必要がない。このため、素励起スピノンはスピン流の新しい媒体として期待されている。今回、擬一次元反強磁性体BaCu₂Si₂O₇のスピノンスピンの中性子散乱実験による検証には至らなかったが、素励起がスピノンであることは明らかとされた。当該物質は、潮解性のある擬一次元反強磁性体Sr₂CuO₃と比べて化学的に安定であり、スピノンスピンの新しいデバイス材料として期待される。

研究成果の概要（英文）：We performed inelastic neutron scattering on quasi-one-dimensional antiferromagnet BaCu₂Si₂O₇. Through detailed analysis on the obtained spectrum, the elemental excitation of the compound was revealed to be spinon. We, hence, tried to probe the spinon spin current induced by the spin Seebeck effect using inelastic neutron scattering. The spin current, however, was not detected in the present experimental condition. Later the temperature region where the spinon carries spin current turned out to be higher than expected. We will continue the direct verification of spinon spin current by changing the experimental conditions including temperature, sample volume, and the type of neutron spectrometer.

研究分野：磁性

キーワード：中性子散乱 スピン流

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

$S = 1/2$ ハイゼンベルグ一次元反強磁性鎖の基底状態は、スピン相関関数がべきで減衰する朝永・ラッティンジャー液体状態(以下、TLL 状態)が実現していることが理論的に知られている。励起状態はスピノンと呼ばれるスピン $S = 1/2$ を運ぶ分数励起で説明され、磁気励起は連続的なスペクトルを示す。対照的に、古典反強磁性ハイゼンベルグ模型の基底状態は長距離秩序を持っており、励起状態であるマグノンはスピン $S = 1$ を運び、磁気スペクトルはシングルピークの分散曲線となる。 $BaCu_2Si_2O_7$ は Cu^{2+} イオンに局在したスピン $S = 1/2$ が c 軸方向に並んだ擬一次元反強磁性体として知られている。磁化率は 150 K にブロードなピークをもち鎖内相互作用定数 $J = 24.1$ meV の Bonner-Fischer 曲線により説明された。また、鎖間相互作用のために、9.2 K で反強磁性転移を示し[1]、コリニアな反強磁性秩序が基底状態となっている。先行研究では、中性子三軸分光器を用いた転移温度以下における低エネルギー領域の磁気スペクトル研究が中心であり、鎖間相互作用、相互作用の異方性、縦揺らぎ連続励起などが注目されていた。一方、中性子源の性質上高エネルギー領域の測定は困難あり、20 meV 以上のスペクトル研究の報告は存在しない[2]。

最近、 Cu^{2+} イオンが b 軸方向に並んだ擬一次元反強磁性体 Sr_2CuO_3 において、TLL 状態からの素励起であるスピノンが、スピンゼーベック効果によって誘起されるスピン流のキャリアになり得ることが報告された[3]。図 1 はその結果を示しており、180 K 付近での正から負へ符号反転がスピノンによるスピン輸送の実現を表している。この物質のネール温度 T_N に対応する 5 K 付近で再度正の符号に転じているのは、鎖間相互作用の存在のために反強磁性秩序が形成されつつあり、低エネルギー励起がマグノンによって記述されることを示している。

2. 研究の目的

一次元反強磁性体は古くから研究されているが、最近ではスピントロニクス分野でも興味を持たれている。そこで、以前に研究された擬一次元反強磁性体 $BaCu_2Si_2O_7$ に対して最新の分光器を用いて、改めて研究する。 $T < T_N$ において、過去に測定されたマグノン励起を幅広い波数空間で再測定するとともに、 $T > T_N$ では、この物質における素励起がスピノン励起であることを明らかにするために、幅広いエネルギー空間でのスペクトル測定を行う。さらに、現在までのスピン流測定は逆スピンホール効果を介して間接的に行われてきた。本研究では素励起を直接的にプローブする中性子非弾性散乱によって、スピン流の観測を試みる。進行波であるスピン流は波数空間での分布が偏っていることから、動的スピン相関関数 $S(\mathbf{k}, \omega)$ と $S(-\mathbf{k}, \omega)$ の磁気 Γ 点に関するスペクトルの非対称性の検証を行う。

3. 研究の方法

測定には Floating Zone 法により作成した $BaCu_2Si_2O_7$ の単結晶試料を用い、J-PARC/MLF-BL12 のチョッパー分光器 HRC を使用した。

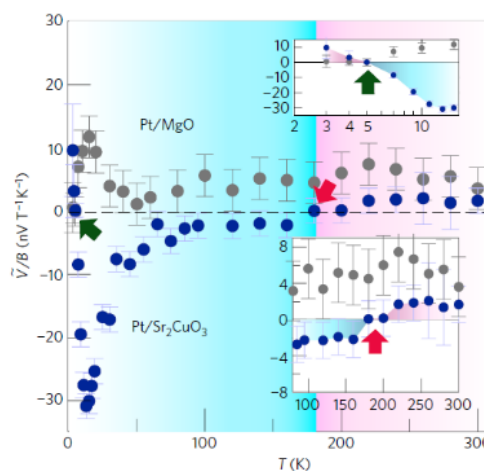


図 1 Sr_2CuO_3 におけるスピンゼーベック電圧の温度変化[3]。

4. 研究成果

図2は $T < T_N$ において、鎖間方向に観測されたマグノン励起の磁気スペクトルである。現実物質では鎖間相互作用が存在するために、3次元磁気 Γ 点から立ち上がる非常に抑制された分散が確認できる。図中の白破線は先行研究により計算された分散曲線であり、最新の分光器を用いて測定された結果にもよく一致している[2]。計算では磁気異方性に起因するギャップが存在するが、今回の実験分解能では観測されなかった。図2の他にも先行研究では測定されていない範囲を含めた幅広い波数エネルギー空間での磁気励起の観測もあわせて行った。今回、最新の分光器で得られた全てのマグノン励起の分散曲線を先行研究で報告されている鎖間相互作用定数の値を用いて説明することができた[2]。

図3は $T > T_N$ における $T = 15$ K で測定された磁気スペクトルである。 $l = -1$ からスピノンの連続励起が立ち上がっている様子が観測される。スピノン励起の下限曲線である Des Cloizeaux-Pearson モードは[4]、磁化率から見積もられた $J = 24.1$ meV とした場合の白破線によく説明された。上限曲線も $J = 24.1$ meV の場合の白破線で示す。今回、 $S = 1/2$ ハイゼンベルグ一次元反強磁性鎖の励起状態における近似式であるミュラー仮説との比較を行い[5]、これに従って計算した中性子の動的構造因子は図3をよく再現していた。 $l = -1$ 上の E 方向への1次元カットでは、実験結果と計算結果ともに 80 meV まで広がる連続励起を確認でき、この物質における $T > T_N$ の素励起はスピノン励起であることが明らかとなった。

図4は試料に温度差を付けて測定した場合の $E = 4.5$ meV 付近の1次元カットである。黒丸が温度差なしの15 Kでのデータ、赤丸が温度差7.5 K(高温側: 19 K, 低温側: 11.5 K)つけた場合のデータである(左軸)。黒三角のシンボルはその2つのデータの差分をとったグラフである(右軸)。誤差伝播のためにエラーバーが大きくなっているが、 $l = 1$ 付近で温度差をつけた場合に強度が減少していることが確認できる。しかし、今回の実験条件では、測定精度の範囲内で磁気 Γ 点に関するスペクトルの非対称性は確認されなかった。最近、共同研究者によって測定された $\text{BaCu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ の逆スピンホール効果によるスピンゼーベック

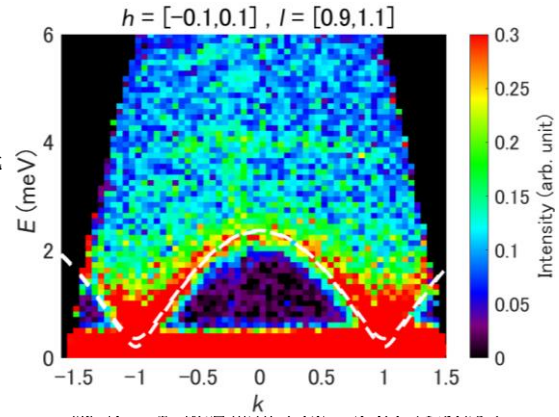


図2 転移温度以下($T = 3$ K)における中性子非弾性散乱実験の結果。白破線は先行研究で見積もられた計算曲線[2]。

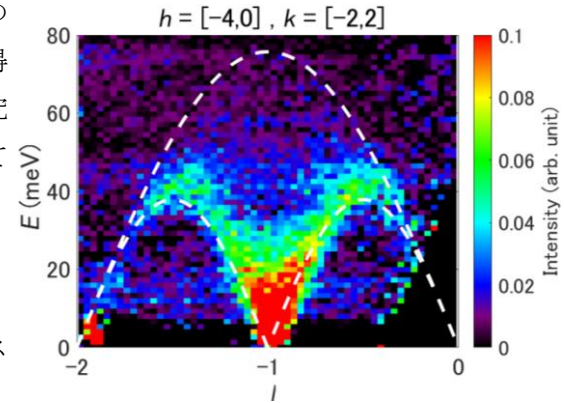


図3 転移温度直上($T = 15$ K)における中性子非弾性散乱実験の結果。白破線は $J = 24.1$ meV で見積もった上限・下限曲線。

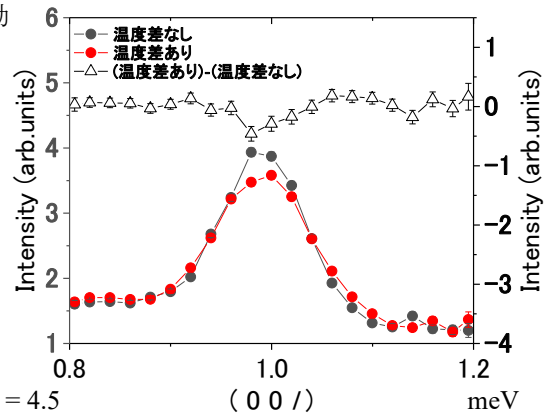


図4 左軸: 試料に温度差なしの場合(黒丸)と温度差ありの場合(赤丸)の中性子非弾性散乱実験の4.5 meV 付近の1次元カット(エラーバーはシンボル内に含まれる)。右軸: 温度差なしのデータから温度差ありのデータを差し引いた結果。

電圧測定では、図 1 中でも見られる負から正への符号反転が 14 K において確認された。これは、この物質中における低エネルギー励起がスピノンによるものとマグノンによるものが等しく存在している結果であり、そのため、今回の測定温度ではスピン流の検出が困難であった可能性がある。

参考文献

- [1] I. Tsukada *et al.*, Phys. Rev. B **60**, 6601 (1999).
- [2] M. Kenzelmann *et al.*, PRB **64**, 054422 (2001).
- [3] D. Hirobe *et al.*, Nature Physics **13**, 30 (2017).
- [4] J. des Cloizeaux and J. J. Pearson, Phys. Rev. **128**, 2131 (1962).
- [5] G. Müller *et al.*, Phys. Rev. B **24**, 1429 (1981).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Hasegawa Shunsuke, Hayashida Shohei, Asai Shinichiro, Matsuura Masato, Igor Zaliznyak, Masuda Takatsugu	4. 巻 3
2. 論文標題 Nontrivial temperature dependence of magnetic anisotropy in multiferroic Ba ₂ MnGe ₂ O ₇	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 L032023
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.3.L032023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 2件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 長谷川舜介、林田翔平、浅井晋一郎、松浦直人、Zaliznyak Igor、益田隆嗣
2. 発表標題 マルチフェロイック物質Ba ₂ MnGe ₂ O ₇ における磁気異方性の非自明な温度依存性
3. 学会等名 量子ビームサイエンスフェスタ（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takatsugu Masuda
2. 発表標題 Nontrivial temperature dependence of magnetic anisotropy in multiferroics Ba ₂ MnGe ₂ O ₇
3. 学会等名 KPS Fall Meeting（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 長谷川舜介、林田翔平、浅井晋一郎、松浦直人、益田隆嗣
2. 発表標題 マルチフェロイック物質Ba ₂ MnGe ₂ O ₇ における軌道混成音響マグノン
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	浅井 晋一郎 (Asai Shinichiro) (00748410)	東京大学・物性研究所・助教 (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------